

**PATENT ABSTRACTS OF JAPAN**

(11)Publication number : 11-126620

(43)Date of publication of application : 11.05.1999

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 09-289633

(71)Applicant : TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB  
INC

(22)Date of filing : 22.10.1997

(72)Inventor : NONOYAMA FUMIO  
SUZUKI KENICHI  
ABE KATSUJI  
ASAOKA MASAHIKO**(54) SEPARATOR FOR FUEL CELL****(57)Abstract:**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a separator for a fuel cell excellent in current collecting performance in a use environment and offering no cost problem, by using a metallic material excellent in workability as a base material.

**SOLUTION:** A separator for a fuel cell constituting a solid high-polymer type fuel cell comprises a material made by applying a coating layer composed of Sn, an Sn-containing alloy, an Sn-containing compound, RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub>, or WC on a surface of a metallic material excellent in corrosion resistance. Because the metallic material is used as a base material, separator press forming workability is excellent and an oxide film formed on the Sn-containing coating layer during use is high in electroconductivity, and current collecting performance is prevented from lowering during use.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

**\* NOTICES \***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

[Claim(s)]

[Claim 1] The separator for fuel cells characterized by to consist of an alloy which is the separator for fuel cells equipped with the current-collection engine performance which contacts each electrode which pinches a solid electrolyte from both sides, is arranged, and forms the gas passageway of distributed gas between these electrodes, and contains Sn and Sn on the front face of the metallic material excellent in corrosion resistance, a compound containing Sn, and an ingredient which has the enveloping layer which consists of RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub>, or WC.

---

[Translation done.]

**\* NOTICES \***

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the separator for fuel cells.

[0002]

[Description of the Prior Art] The separator for fuel cells is a configuration member which constitutes a polymer electrolyte fuel cell, it contacts each electrode which pinches a solid electrolyte from both sides, is arranged, forms distributed gas paths, such as fuel gas and oxidant gas, between these electrodes, and is equipped with the current collection engine performance which contacts an electrode and derives a current.

[0003] Generally this separator consists of metallic materials, such as precise carbon graphite, or SUS, Ti, Cu, aluminum, as shown in JP,4-95354,A, JP,8-222237,A, etc.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] By the way, since the high current collection engine performance is maintained also by prolonged activity highly [ the current collection engine performance ], the separator which consists of precise carbon graphite can be called outstanding separator from a viewpoint of the current collection engine performance. However, many heights, a slot, etc. are formed in the field which counters the electrode of a separator that the path formation engine performance for forming a gas passageway should be given. However, since precise carbon graphite is a very weak ingredient, it has the problem that mass production is difficult while it is not easy to machine cutting etc. that many heights and slots should be formed in the front face of a separator and processing cost becomes high.

[0005] On the other hand, since the metallic material is excellent in reinforcement and ductility in the above-mentioned separator which solves and consists of metallic materials as compared with precise carbon graphite, press working of sheet metal which forms many heights and slots that the path formation engine performance of a gas passageway should be given is possible, and there is an advantage that processing cost is low and mass production is also easy. However, under the operating environment of a separator, an oxide film is generated by the front face, and it is [ a metallic material ] easy, and it has the problem that contact resistance with the electrode of the generated oxide film is large, and reduces the current collection engine performance of a separator.

[0006] Adopting as the front face of the metallic material excellent in workability the ingredient which coated carbon graphite excellent in electrical conductivity as a component of a separator that these problems should be coped with is proposed. Moreover, it is possible to coat metallic materials, such as Au excellent in electrical conductivity. However, the ingredient of the former which uses a metallic material as a base material has a problem also in processing cost while reliance lacks in the airtightness of the coating ingredient to a base material, and adhesion.

Moreover, the latter ingredient has a problem in the point that a coating ingredient is expensive.

[0007] Therefore, the object of this invention uses the metallic material excellent in workability as a base material, and it excels in the electrical conductivity under an operating environment, and it is to offer the separator for fuel cells which is satisfactory in cost.

[0008]

[Means for Solving the Problem] This invention contacts the separator for fuel cells, and each electrode which pinches a solid electrolyte from both sides especially, is arranged, and form the gas passageway of distributed gas between these electrodes. It is the separator for fuel cells equipped with the current collection engine performance, and is characterized by consisting of an alloy which contains Sn and Sn on the front face of the metallic material excellent in corrosion resistance, a compound containing Sn, and an ingredient which has the enveloping layer which consists of RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub>, or WC.

[0009]

[Embodiment of the Invention] The separator concerning this invention can use the metallic material excellent in corrosion resistance as a base material, and can mention SUS, Ti, Cu, aluminum, these alloys, etc. as this metallic material. Moreover, the enveloping layers which constitute the separator concerning this invention are the alloy containing Sn and Sn, a compound containing Sn, and RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub> or WC.

[0010] As an alloy containing Sn, Sn-nickel, Sn-Fe, Sn-Ti, etc. can be mentioned. Moreover, SnO<sub>2</sub> can be mentioned as a compound containing Sn. As an oxide, RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub>, WC, etc. can be mentioned to others. These may be used together even if independent. Generally, although the enveloping layer which constitutes the separator concerning this invention coats each above-mentioned ingredient on the surface of a base material and is formed, it precedes coating these ingredients and can coat the front face of a base material with other ingredients. For example, it precedes coating Sn on the surface of a base material, and nickel can be beforehand coated on the surface of a base material. As a coating means, means, such as plating, \*\*\*\*\*, ion plating, and spreading, are employable.

[0011] Moreover, in the separator concerning this invention, after carrying out press forming of heating at the temperature more than the melting point of Sn after forming an enveloping layer on the surface of a base material, and the ingredient in which the enveloping layer was formed on the front face of a base material to the configuration of a separator, it can heat at the temperature more than the melting point of Sn. After carrying out press forming of the ingredient which formed the enveloping layer in both sides of a base material in the separator concerning this invention to the configuration of a separator, it can consider as the structure of joining both separators mutually through Sn and having a channel for cooling among these both, a fuel gas side further again by carrying out the polymerization of the oxidant gas side separator, and heating at the temperature more than the melting point of Sn.

[0012]

[Function and Effect of the Invention] In the separator for fuel cells which this invention makes applicable to application, when this separator consists only of metallic materials, such as SUS, Ti, Cu, and aluminum, since it is put to the oxidizing atmosphere in which a hot steam forms the contact section with an electrode at the time of operation of a fuel cell, an oxide film is formed in the contact part concerned. For this reason, a separator makes contact resistance increase and makes current collection effectiveness fall.

[0013] On the other hand, the separator concerning this invention uses a corrosion resistance metallic material as a base material, and is equipped with the alloy which contains Sn and Sn on the front face, the compound containing Sn, and the enveloping layer which consists of RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub>, or WC. Even if electrical conductivity is high in itself, and it oxidizes even if and the alloy containing Sn and Sn becomes an oxide, since lowering of electrical conductivity is very small, making contact resistance increase during operation of a fuel cell does not almost have it, and it holds high current collection effectiveness. Moreover, the compound containing Sn, and RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub> and WC have high electrical conductivity in the condition of having already oxidized. For this reason, there is almost no making contact resistance increase during operation of a fuel cell, and it holds high current collection effectiveness.

[0014] The alloy containing Sn and Sn or the compound containing Sn, and RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub> and WC can be coated with means, such as plating, \*\*\*\*\*, ion plating, and spreading, easily and cheaply to the front face of a base material. Moreover, become empty and there is no possibility that the enveloping layer of airtightness and adhesion formed of coating may be good, and may exfoliate from a base material front face.

[0015]

[Test Example(s)] The polymer electrolyte fuel cell which uses as a configuration member the separator which forms the component of the separator concerning this invention in order to get to know the existence of the effect to the contact resistance at the time of being exposed to a steam ambient atmosphere, and starts this invention about the sheet metal with which this invention consists of various kinds of metallic materials which constitute the separator for fuel cells made applicable to application was constituted, and examination about the cell property was performed.

Ti which is the metallic material currently generally used as a separator in the example of an exam, (Example 1 of a trial) The sheet metal which consists of aluminum, Cu, SUS316, and SUS304, the sheet metal which comes to coat the front face of the sheet metal made from SUS304 carbon graphite, and the plate which consists of precise carbon graphite are produced, respectively. These sheet metal and plates were exposed to the steam ambient atmosphere of 100% of humidity at 80 degrees C for 96 hours, and the contact resistance before and after exposure in the steam ambient atmosphere in these sheet metal and plates was measured. The obtained result is shown in the graph of drawing 1.

[0016] When the result of drawing 1 is referred to, before exposing contact resistance to a steam in the sheet metal which consists of Ti, aluminum, Cu, SUS316, and SUS304, it is comparatively small, but increasing remarkably will be admitted if exposed to a steam ambient atmosphere. Since a steam is an oxidizing atmosphere, an oxide film is generated by the sheet metal front face, and this is understood to be what originates in generation of an oxide film and contact resistance is increasing substantially. Therefore, in the separator which makes these sheet metal a component, during operation of a fuel cell, contact resistance increases and current collection effectiveness falls remarkably.

[0017] On the other hand, with the sheet metal which comes to coat the front face of the sheet metal made from SUS304 carbon graphite, and the plate which consists of precise carbon graphite, hardly changing, even if it is small before exposing contact resistance to a steam ambient atmosphere, and exposed to a steam ambient atmosphere is admitted. Therefore, in the separator which makes these sheet metal a component, current collection effectiveness there are few increments in contact resistance also during operation of a fuel cell, and high is held. (Example 2 of a trial) In the example of an exam, the sheet metal of SUS304 which is the metallic material currently generally used as a separator is used as the base material. And the front face of this base material is coated with Sn by \*\*\*\*\*, and it is formed in it. The thickness of the enveloping layer of Sn component produced sheet metal as 30 micrometers, 20 micrometers, and 10 micrometers, respectively. These sheet metal was exposed to the steam ambient atmosphere of 100% of humidity at 80 degrees C for 96 hours, and the contact resistance before and after exposure in the steam ambient atmosphere in these sheet metal was measured. The obtained result is shown in the graph of drawing 2.

[0018] Reference of the result of drawing 2 admits that the contact resistance before exposing to a steam ambient atmosphere is remarkably small as compared with the sheet metal which consists of Ti, aluminum, Cu, SUS316, and SUS304, and the increment in the contact resistance after being exposed to a steam ambient atmosphere is very small in the sheet metal which has the enveloping layer of Sn component. Therefore, in the separator which makes these sheet metal a component, current collection effectiveness there are few increments in contact resistance also during operation of a fuel cell, and high is held.

[0019] In addition, in the example of an exam, the sheet metal which has an enveloping layer with a thickness of 2 micrometers - 10 micrometers in which it excels in corrosion resistance on the front face of the base material which is sheet metal of SUS304, and electrical conductivity comes to coat SnO<sub>2</sub>, RuO<sub>2</sub>, IrO<sub>2</sub>, MnO<sub>2</sub> [ high ], and high WC by ion plating, respectively was produced, respectively. And when the trial exposed to the same steam ambient atmosphere as the above was tried, it was admitted not to mention the contact resistance before exposing any sheet metal to a steam ambient atmosphere being remarkably small that the increment in the contact resistance after exposure in a steam ambient atmosphere was very small.

In the example of an exam, the sheet metal of SUS304 which is the metallic material currently

generally used as a separator is used as a base material. (Example 3 of a trial) Come to coat the front face of this base material Sn by \*\*\*\*\*. The sheet metal which has the enveloping layer of Sn component (30 micrometers in thickness, 20 micrometers, and 10 micrometers), And after giving nickel plating with a thickness of 2 micrometers for the sheet metal of SUS304 as a base material on the surface of *Perilla frutescens* (L.) Britton var. *crispa* (Thunb.) Decne., the sheet metal which has the enveloping layer of Sn component (30 micrometers in thickness which comes to coat the front face of nickel plating layer Sn by \*\*\*\*\*), 20 micrometers, and 10 micrometers) was produced, respectively. And these sheet metal was heat-treated at 250 degrees C according to the non-oxidizing atmosphere for 1 hour.

[0020] Each heat-treated sheet metal was exposed to the steam ambient atmosphere of 100% of humidity at 80 degrees C for 96 hours, and the contact resistance before and after exposure in the steam ambient atmosphere in these sheet metal was measured. The obtained result is shown in the graph of drawing 3. If these results are referred to, the contact resistance in these sheet metal will be lower than an EQC or it as compared with the sheet metal shown in the example 2 which has the enveloping layer of Sn component, and it will be admitted that the increment in the contact resistance after being exposed to a steam ambient atmosphere is very small. Therefore, in the separator which makes these sheet metal a component, current collection effectiveness there are few increments in contact resistance also during operation of a fuel cell, and high is held.

[0021] It is admitted [ in / both / the sheet metal which comes to form the enveloping layer of Sn component with a thickness of 10 micrometers in the front face of nickel plating layer after giving nickel plating with a thickness of 2 micrometers especially to the front face of the sheet metal-like base material of SUS304 ] that contact resistance equivalent to the precise carbon graphite shown in the example 1 of a trial before and after exposure in a steam ambient atmosphere is shown. In addition, although the above-mentioned heat-treatment is performed in the non-oxidizing atmosphere, you may heat-treat by the usual oxidizing atmosphere. In this case, since an oxide film is generated by the front face of the enveloping layer which covers a base material, it is desirable to remove the generated oxide film.

The sheet metal which comes to form the enveloping layer of Sn component with a thickness of 10 micrometers in the front face of the sheet metal-like base material of SUS304 in the example of an exam, (Example 4 of a trial) After giving nickel plating with a thickness of 2 micrometers to the front face of the sheet metal-like base material of SUS304, on the front face of nickel plating layer 10 micrometers in and thickness About what heat-treated the sheet metal which comes to form the enveloping layer of 30-micrometer Sn component at 250 degrees C according to the non-oxidizing atmosphere for 1 hour, change of the cross-section organization of an enveloping layer and the X-ray diffraction of an enveloping layer were performed. The result is shown in drawing 4 - drawing 8.

[0022] Drawing 4 shows the optical microscope photograph of the cross-section organization before and behind heat-treatment of the sheet metal which comes to form the enveloping layer of Sn component with a thickness of 10 micrometers in the front face of the sheet metal-like base material of SUS304. Drawing 5 shows the chart of the X-ray diffraction of the enveloping layer after heat-treatment of this sheet metal. Reference of this cross-section organization checked that it was a Sn-Fe compound as a result of accepting a clear organization change by heat-treatment at 250 degrees C and analyzing this organization.

[0023] Drawing 6 shows the optical microscope photograph of the cross-section organization before and behind heat-treatment of the sheet metal which comes to form the enveloping layer of Sn component with a thickness of 10 micrometers in the front face of nickel plating layer, after giving nickel plating with a thickness of 2 micrometers to the front face of the sheet metal-like base material of SUS304. Drawing 7 shows the chart of the X-ray diffraction of the enveloping layer after heat-treatment of this sheet metal. Reference of this cross-section organization checked that it was a Sn-nickel compound as a result of accepting a clear organization change by heat-treatment at 250 degrees C and analyzing this organization.

[0024] Drawing 8 shows the optical microscope photograph of the cross-section organization

after heat-treatment of the sheet metal which comes to form the enveloping layer of Sn component with a thickness of 30 micrometers in the front face of nickel plating layer, after giving nickel plating with a thickness of 2 micrometers to the front face of the sheet metal-like base material of SUS304. As a result of analyzing this enveloping layer, it was checked that the Sn-nickel compound is generating to inside at the enveloping layer. However, it is checked that Sn remains on the surface of an organization, and the contact resistance of the sheet metal after this heat-treatment originates in the surface residual Sn, and is accepted to be a thing comparable as the sheet metal before heat-treatment. Therefore, if there are too many amounts of coatings of Sn, even if it heat-treats, Sn remains on a front face and effectiveness of heat-treatment cannot be expected.

[0025] When forming the enveloping layer of Sn component in the front face of nickel layer from the above result after coating the front face of the sheet metal-like base material of SUS304 with nickel, in order to expect a heating treatment effect, as for the enveloping layer of Sn component, it is desirable that thickness is 10 micrometers or less. In this case, as for nickel layer, it is desirable that it is the range whose thickness is 2 micrometers - 10 micrometers. When the thickness of nickel layer is less than 2 micrometers, the rate of Sn which remains on a front face becomes high after heat-treatment, and effectiveness of heat-treatment cannot be expected. Moreover, when the thickness of nickel layer exceeds 10 micrometers, while being cost top disadvantage, in case press forming is carried out to the configuration of a separator, there is a possibility of producing trouble.

[0026] In addition, it is also the same as when changing to the sheet metal-like base material of SUS and adopting metallic materials, such as Ti, and when forming the enveloping layer of Sn component in the front face of the sheet metal-like base material of SUS304, in order to expect a heating treatment effect, it is desirable [ the enveloping layer of Sn component ] that thickness is 5 micrometers or less. Because, in 5 micrometers or more, since the rate of Sn which remains after heat-treatment increases, the property of lowering the contact resistance of the generated Sn-Ti compound is not fully harnessed.

(Example 5 of a trial) In the example of an exam, press forming of the sheet metal which formed the enveloping layer of Sn component in the front face of nickel layer after coating the front face or this front face of a sheet metal-like base material (0.1mm - 0.3mm in thickness) of SUS304 and Ti with nickel was carried out to the configuration of the separator for fuel cells so that it might become the electrode contact side whose enveloping layer side has much projections. Subsequently, the sheet metal which carried out press forming was heat-treated at the temperature more than the melting point of Sn under the non-oxidizing atmosphere, and the separator for fuel cells was formed.

[0027] It was checked by the obtained separator that the Sn-Fe compound, the Sn-Ti compound, the Sn-nickel compound, etc. exist in the front face by the side of electrode contact. In addition, a shaping means to use the usual shaping metal mold which has vertical both molds may be enough for the above-mentioned press forming, and the shaping means which carries out hydraulic forming using a punch or female mold may be used for it. In press forming, since the enveloping layer of Sn component is rich in extensivity, this enveloping layer has covered the front face of a base material also [ near the severe height of deformation ], and the exfoliation from a base material front face is not accepted.

(Example 6 of a trial) In the example of an exam, after coating both sides or these both sides of a sheet metal-like base material (0.1mm - 0.3mm in thickness) of SUS304 and Ti with nickel, press forming of both sides of the sheet metal in which the enveloping layer of Sn component was formed on the front face of nickel layer was carried out to the configuration of the separator for fuel cells so that it might become the electrode contact side which has much projections, and the sheet metal for the object for fuel gas side separators and oxidant gas side separators was formed. Subsequently, the polymerization of both [ these ] the sheet metal was carried out, it heat-treated at the temperature more than the melting point of Sn under the non-oxidizing atmosphere, and the fuel gas side separator to which both sheet metal of each other was joined through Sn, and the oxidant gas side separator formed the separator of one.

[0028] In the obtained separator, it can constitute in the structure of having a channel for



cooling between the joints of both sheet metal, and reduction of the cost of the separator for fuel cells and conductive improvement between a fuel gas side and an oxidant gas side separator can be aimed at by considering as this configuration. In addition, in this separator, it was checked that it is checked that the Sn-Fe compound, the Sn-Ti compound, the Sn-nickel compound, etc. exist in the front face by the side of electrode contact, and the enveloping layer has not exfoliated from a base material front face.

(Example 7 of a trial) In the example of an exam, after giving nickel plating with a thickness of 2 micrometers to the front face of the sheet metal-like base material (0.15mm in thickness) of SUS304, press forming of the sheet metal in which the enveloping layer of Sn component with a thickness of 10 micrometers was formed on the front face of nickel layer was carried out, and it heat-treated at the temperature more than the melting point of Sn under the non-oxidizing atmosphere after that, and the fuel gas side separator and the oxidant gas side separator were formed. Both [ these ] separators are adopted, a polymer electrolyte fuel cell is constituted, the cell property is measured, and the result is shown in the graph of drawing 9.

[0029] In addition, the property of the polymer electrolyte fuel cell which uses as a configuration member various kinds of separators which come to carry out press forming of the sheet metal in which the enveloping layer of a precise carbon graphite component with a thickness of 10 micrometers was formed on the front face of the sheet metal-like base material (0.15mm in thickness) of SUS304, and the sheet metal of only the sheet metal-like base material (0.15mm in thickness) of SUS316 and Ti as an example of a comparison is collectively shown in the graph of drawing 9.

[0030] When this drawing was referred to, in the separator for fuel cells concerning the example of an exam, it was admitted that a property almost equivalent to the separator made from precise carbon graphite was acquired, and, moreover, it was checked that this property does not almost have aging.

---

[Translation done.]



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-126620

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月11日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>  
H01M 8/02

識別記号

F I  
H01M 8/02

B

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全11頁)

(21) 出願番号 特願平9-289633

(22) 出願日 平成9年(1997)10月22日

(71) 出願人 000003609  
株式会社豊田中央研究所  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1  
(72) 発明者 野々山 史男  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
(72) 発明者 鈴木 憲一  
愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内  
(74) 代理人 弁理士 大川 宏

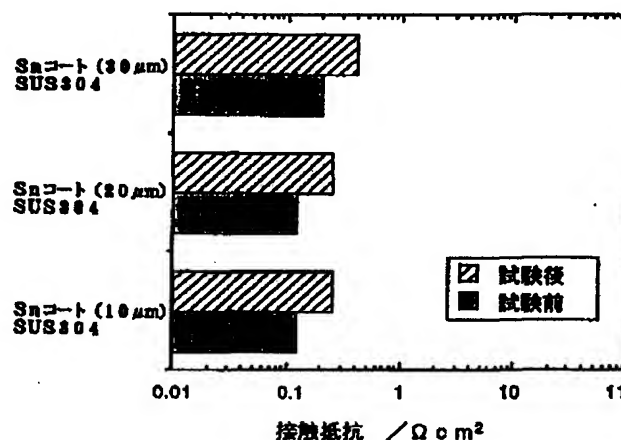
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータ

(57) 【要約】

【課題】 加工性に優れた金属材料を基材とし、使用環境下での集電性能に優れ、かつ、コスト的に問題のない燃料電池用セパレータを提供する。

【解決手段】 固体高分子型燃料電池を構成する燃料電池用セパレータであり、耐食性に優れた金属材料の表面に Sn、Sn を含有する合金、または Sn を含有する化合物からなる被覆層を有する材料にて構成する。基材が金属材料であるため、セパレータをプレス形成する加工性に優れ、かつ、使用中に形成される Sn 成分被覆層の酸化膜は電気伝導性が高く、使用中での集電性能に低下が防止される。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】固体電解質を両側から挟持する各電極に接触して配置されて該電極との間に供給ガスのガス通路を形成する、集電性能を備えた燃料電池用セパレータであり、耐食性に優れた金属材料の表面にSn、Snを含有する合金、Snを含有する化合物、RuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>またはWCからなる被覆層を有する材料にて構成されていることを特徴とする燃料電池用セパレータ。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用セパレータに関する。

## 【0002】

【従来の技術】燃料電池用セパレータは、固体高分子型燃料電池を構成する構成部材であり、固体電解質を両側から挟持する各電極に接触して配置されて、該電極との間に燃料ガス、酸化剤ガス等の供給ガス通路を形成するもので、電極と接触して電流を導出する集電性能を備えている。

【0003】かかるセパレータは、特開平4-95354号公報、特開平8-222237号公報等に示されているように、一般には、緻密カーボングラファイト、またはSUS、Ti、Cu、Al等の金属材料にて構成される。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】ところで、緻密カーボングラファイトにて構成されるセパレータは、集電性能が高く、かつ長期間の使用によっても高い集電性能が維持されることから、集電性能の観点からは優れたセパレータといえることができる。しかしながら、セパレータの電極に対向する面には、ガス通路を形成するための通路形成性能を付与すべく多数の突起部、溝部等が形成される。しかし、緻密カーボングラファイトは非常に脆い材料であることから、セパレータの表面に多数の突起部や溝部を形成すべく切削加工等の機械加工を施すことは容易ではなく、加工コストが高くなるとともに量産が困難であるという問題がある。

【0005】一方、上記したとき金属材料にて構成されるセパレータにおいては、緻密カーボングラファイトに比較して金属材料が強度、延性に優れていることから、ガス通路の通路形成性能を付与すべく多数の突起部や溝部を形成するプレス加工が可能であって、加工コストが低く量産も容易であるという利点がある。しかしながら、金属材料は、セパレータの使用環境の下では、その表面に酸化膜が生成され易く、生成された酸化膜の電極との接触抵抗が大きくてセパレータの集電性能を低下させるという問題がある。

【0006】これらの問題に対処すべく、セパレータの構成材料として、加工性に優れた金属材料の表面に、電気伝導性に優れたカーボングラファイトをコーティング

した材料を採用することが提案されている。また、電気伝導性に優れたAu等の金属材料をコーティングすることが考えられる。しかしながら、金属材料を基材とする前者の材料は、基材に対するコーティング材料の気密性、密着性に信頼が欠けるとともに処理コストにも問題がある。また、後者の材料はコーティング材料が高価である点に問題がある。

【0007】従って、本発明の目的は、加工性に優れた金属材料を基材とし、使用環境下での電気伝導性に優れ、かつ、コスト的に問題のない燃料電池用セパレータを提供することにある。

## 【0008】

【課題を解決するための手段】本発明は燃料電池用セパレータ、特に、固体電解質を両側から挟持する各電極に接触して配置されて該電極との間に供給ガスのガス通路を形成する、集電性能を備えた燃料電池用セパレータであり、耐食性に優れた金属材料の表面にSn、Snを含有する合金、Snを含有する化合物、RuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>またはWCからなる被覆層を有する材料にて構成されていることを特徴とするものである。

## 【0009】

【発明の実施の形態】本発明に係るセパレータは、耐食性に優れた金属材料を基材とするものであり、かかる金属材料としては、SUS、Ti、Cu、Al、これらの合金等を挙げることができる。また、本発明に係るセパレータを構成する被覆層は、Sn、Snを含有する合金、Snを含有する化合物、RuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>またはWCである。

【0010】Snを含有する合金としては、Sn-Ni、Sn-Fe、Sn-Ti等を挙げることができる。またSnを含有する化合物としては、SnO<sub>2</sub>を挙げることができる。酸化物としては他にRuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>、WC等を挙げることができる。これらは、単独であっても併用されてもよい。本発明に係るセパレータを構成する被覆層は、一般には上記した各材料を基材の表面にコーティングして形成されるが、これらの材料をコーティングするに先だって、基材の表面に他の材料をコーティングしておくことができる。例えば、基材の表面にSnをコーティングするに先だって、基材の表面に予めNiをコーティングしておくことができる。コーティング手段としては、鍍金、クラッディング、イオンプレーティング、塗布等の手段を採用することができる。

【0011】また、本発明に係るセパレータにおいては、基材の表面に被覆層を形成した後にSnの融点以上の温度で加熱すること、基材の表面に被覆層を形成した材料をセパレータの形状にプレス成形した後にSnの融点以上の温度で加熱することができる。さらにまた、本発明に係るセパレータにおいては、基材の両面に被覆層を形成した材料をセパレータの形状にプレス成形した

10

20

30

40

50

後、燃料ガス側、酸化剤ガス側セパレータを重合してSnの融点以上の温度で加熱することにより、両セパレータをSnを介して互いに接合してこれら両者間に冷却用の水路を有する構造とすることができる。

#### 【0012】

【発明の作用・効果】本発明が適用対象としている燃料電池用セパレータにおいては、該セパレータがSUS、Ti、Cu、Al等の金属材料のみからなる場合には、燃料電池の運転時、電極との接触部は高温の水蒸気が形成する酸化雰囲気中に曝されるため、当該接触部位に酸化膜が形成される。このため、セパレータは接触抵抗を増加させて集電効率を低下させることになる。

【0013】これに対して、本発明に係るセパレータは、耐食性の金属材料を基材とし、その表面にSn、Snを含有する合金、Snを含有する化合物、RuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>またはWCからなる被覆層を備えたものである。Sn、Snを含有する合金はそれ自体電気伝導性が高く、かつ、たとえ酸化して酸化物となっても電気伝導性の低下は極めて小さいことから、燃料電池の運転中に接触抵抗を増加させることはほとんどなく、高い集電効率を保持する。また、Snを含有する化合物、RuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>およびWCは既に酸化された状態で高い電気伝導性を持つ。このため、燃料電池の運転中に接触抵抗を増加させることはほとんどなく、高い集電効率を保持する。

【0014】Sn、Snを含有する合金、またはSnを含有する化合物、RuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>およびWCは、鍍金、クラディング、イオンプレーティング、塗布等の手段にて、基材の表面に対して容易に、かつ安価にコーティングすることができる。また、コーティングにより形成される被覆層は気密性および密着性ともに良好であって基材表面から剥離するおそれはすくない。

#### 【0015】

【試験例】本発明が適用対象とする燃料電池用セパレータを構成する各種の金属材料からなる薄板について、水蒸気雰囲気に暴露した場合の接触抵抗に対する影響の有無を知るべく本発明に係るセパレータの構成材料を形成し、また、本発明に係るセパレータを構成部材とする固体高分子型燃料電池を構成してその電池特性についての検討を行った。

(試験例1) 本試験例では、セパレータとして一般に使用されている金属材料であるTi、Al、Cu、SUS316、SUS304からなる薄板、SUS304製薄板の表面にカーボングラファイトをコーティングしてなる薄板、緻密カーボングラファイトからなる板をそれぞれ作製して、これらの薄板および板を80℃で湿度100%の水蒸気雰囲気に96時間暴露し、これらの薄板および板における水蒸気雰囲気での暴露の前後の接触抵抗を測定した。得られた結果を図1のグラフに示す。

【0016】図1の結果を参照すると、Ti、Al、C

u、SUS316、SUS304からなる薄板では、接触抵抗は、水蒸気に暴露する以前においては比較的小さいが、水蒸気雰囲気に暴露すると著しく増加することが認められる。これは、水蒸気が酸化性雰囲気であることから薄板表面に酸化膜が生成され、酸化膜の生成に起因して接触抵抗が大幅に増加しているものと理解される。従って、これらの薄板を構成材料とするセパレータにおいては、燃料電池の運転中に接触抵抗が増加して集電効率が著しく低下する。

【0017】これに対して、SUS304製薄板の表面にカーボングラファイトをコーティングしてなる薄板、緻密カーボングラファイトからなる板では、接触抵抗は、水蒸気雰囲気に暴露する以前においては小さく、水蒸気雰囲気に暴露してもほとんど変化しないことが認められる。従って、これらの薄板を構成材料とするセパレータにおいては、燃料電池の運転中も接触抵抗の増加が少なく高い集電効率を保持する。

(試験例2) 本試験例では、セパレータとして一般に使用されている金属材料であるSUS304の薄板を基材としている。そして、この基材の表面にSnをクラディングによりコーティングして形成している。Sn成分の被覆層の厚さは、30μm、20μmおよび10μmとして薄板をそれぞれ作製した。これらの薄板を80℃で湿度100%の水蒸気雰囲気に96時間暴露し、これらの薄板における水蒸気雰囲気での暴露の前後の接触抵抗を測定した。得られた結果を図2のグラフに示す。

【0018】図2の結果を参照すると、Sn成分の被覆層を有する薄板では、Ti、Al、Cu、SUS316、SUS304からなる薄板に比較して、水蒸気雰囲気に暴露する以前での接触抵抗は著しく小さく、かつ、水蒸気雰囲気に暴露した後における接触抵抗の増加は極めて小さいことが認められる。従って、これらの薄板を構成材料とするセパレータにおいては、燃料電池の運転中も接触抵抗の増加が少なく高い集電効率を保持する。

【0019】なお、本試験例では、SUS304の薄板である基材の表面に耐食性に優れ、かつ電気伝導性が高いSnO<sub>2</sub>、RuO<sub>2</sub>、IrO<sub>2</sub>、MnO<sub>2</sub>、WCをそれぞれイオンプレーティングによりコーティングしてなる、厚さ2μm～10μmの被覆層を有する薄板をそれぞれ作製した。そして上記と同様の水蒸気雰囲気に暴露する試験を試みたところ、いずれの薄板も、水蒸気雰囲気に暴露する以前での接触抵抗が著しく小さいことは勿論のこと、水蒸気雰囲気での暴露後の接触抵抗の増加は極めて小さいことが認められた。

(試験例3) 本試験例では、セパレータとして一般に使用されている金属材料であるSUS304の薄板を基材として、この基材の表面にSnをクラディングによりコーティングしてなる、厚さ30μm、20μm、10μmのSn成分の被覆層を有する薄板、および、SUS

304の薄板を基材としその表面に厚さ2 $\mu$ mのNi鍍金を施した後Ni鍍金層の表面にSnをクラディングによりコーティングしてなる、厚さ30 $\mu$ m、20 $\mu$ m、10 $\mu$ mのSn成分の被覆層を有する薄板をそれぞれ作製した。そしてこれらの薄板を非酸化性雰囲気にて250℃で1時間加熱処理した。

【0020】加熱処理された各薄板を80℃で湿度100%の水蒸気雰囲気中に96時間暴露し、これらの薄板における水蒸気雰囲気での暴露の前後の接触抵抗を測定した。得られた結果を図3のグラフに示す。これらの結果を参照すると、これらの薄板における接触抵抗は、Sn成分の被覆層を有する実施例2に示す薄板に比較して同等またはそれより低く、かつ、水蒸気雰囲気中に暴露した後における接触抵抗の増加は極めて小さいことが認められる。従って、これらの薄板を構成材料とするセパレータにおいては、燃料電池の運転中も接触抵抗の増加が少なく、高い集電効率を保持する。

【0021】特に、SUS304の薄板状基材の表面に厚さ2 $\mu$ mのNi鍍金を施した後Ni鍍金層の表面に厚さ10 $\mu$ mのSn成分の被覆層を形成してなる薄板においては、水蒸気雰囲気での暴露の前後共に、試験例1に示す緻密カーボングラファイトと同等の接触抵抗を示すことが認められる。なお、上記した加熱処理は非酸化性雰囲気中で行っているが、通常の酸化雰囲気中で加熱処理を行ってもよい。この場合には、基材を被覆する被覆層の表面に酸化膜が生成されるため、生成された酸化膜を除去するようにすることが好ましい。

(試験例4) 本試験例では、SUS304の薄板状基材の表面に厚さ10 $\mu$ mのSn成分の被覆層を形成してなる薄板、およびSUS304の薄板状基材の表面に厚さ2 $\mu$ mのNi鍍金を施した後Ni鍍金層の表面に厚さ10 $\mu$ m、30 $\mu$ mのSn成分の被覆層を形成してなる薄板を非酸化性雰囲気にて250℃で1時間加熱処理したものについて、被覆層の断面組織の変化、および被覆層のX線回折を行った。その結果を、図4～図8に示す。

【0022】図4は、SUS304の薄板状基材の表面に厚さ10 $\mu$ mのSn成分の被覆層を形成してなる薄板の加熱処理前後における断面組織の光学顕微鏡写真を示す。図5は同薄板の加熱処理後における被覆層のX線回折のチャートを示している。この断面組織を参照すると、250℃での加熱処理により明らかな組織変化が認められ、この組織を分析した結果Sn-Fe化合物であることが確認された。

【0023】図6は、SUS304の薄板状基材の表面に厚さ2 $\mu$ mのNi鍍金を施した後Ni鍍金層の表面に厚さ10 $\mu$ mのSn成分の被覆層を形成してなる薄板の加熱処理前後における断面組織の光学顕微鏡写真を示す。図7は同薄板の加熱処理後における被覆層のX線回折のチャートを示している。この断面組織を参照する

と、250℃での加熱処理により明らかな組織変化が認められ、この組織を分析した結果Sn-Ni化合物であることが確認された。

【0024】図8は、SUS304の薄板状基材の表面に厚さ2 $\mu$ mのNi鍍金を施した後Ni鍍金層の表面に厚さ30 $\mu$ mのSn成分の被覆層を形成してなる薄板の加熱処理後の断面組織の光学顕微鏡写真を示している。この被覆層を分析した結果、被覆層の中にSn-Ni化合物が生成していることが確認された。但し、組織の表面にはSnが残留していることが確認され、かかる加熱処理後の薄板の接触抵抗は、表面の残留Snに起因して、加熱処理前の薄板と同程度であるものと認められる。従って、Snのコーティング量が多すぎると、加熱処理をしても表面にSnが残留して加熱処理の効果が期待できない。

【0025】以上の結果から、SUS304の薄板状基材の表面にNiをコーティングした後Ni層の表面にSn成分の被覆層を形成する場合に、加熱処理効果を期待するには、Sn成分の被覆層は厚さが10 $\mu$ m以下であることが好ましい。この場合、Ni層は厚さが2 $\mu$ m～10 $\mu$ mの範囲であることが好ましい。Ni層の厚さが2 $\mu$ m未満である場合には、加熱処理後、表面に残留するSnの割合が高くなり、加熱処理の効果が期待できない。また、Ni層の厚さが10 $\mu$ mを越える場合には、コスト上不利であるとともに、セパレータの形状にプレス成形する際に支障を生じるおそれがある。

【0026】なお、SUSの薄板状基材に換えて、Ti等の金属材料を採用する場合も同様であり、また、SUS304の薄板状基材の表面にSn成分の被覆層を形成する場合に加熱処理効果を期待するには、Sn成分の被覆層は厚さが5 $\mu$ m以下であることが好ましい。なぜなら、5 $\mu$ m以上では加熱処理後に残留するSnの割合が多くなるため、生成したSn-Ti化合物の接触抵抗を下げるという特性が十分に活かされない。

(試験例5) 本試験例では、SUS304およびTiの薄板状基材(厚さ0.1mm～0.3mm)の表面、または、同表面にNiをコーティングした後Ni層の表面にSn成分の被覆層を形成した薄板を、被覆層側が多数の突起を有する電極接触側となるように、燃料電池用セパレータの形状にプレス成形した。次いで、プレス成形した薄板を、非酸化性雰囲気の下でSnの融点以上の温度にて加熱処理して燃料電池用セパレータを形成した。

【0027】得られたセパレータには、電極接触側の表面にSn-Fe化合物、Sn-Ti化合物、Sn-Ni化合物等が存在していることが確認された。なお、上記したプレス成形は、上下両型を有する通常の成形金型を使用する成形手段で十分であり、また、上型、下型のいずれかを用いて液圧成形する成形手段でもよい。プレス成形においては、Sn成分の被覆層が展伸性に富むため、同被覆層は変形の激しい突起部の近傍においても基

材の表面を覆っていて、基材表面からの剥離は認められない。

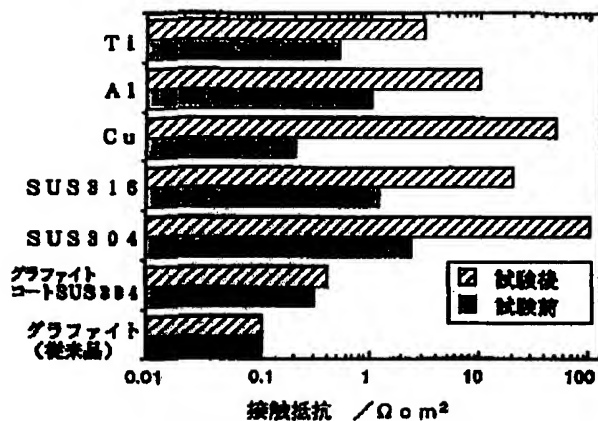
【試験例6】本試験例では、SUS304およびTiの薄板状基材（厚さ0.1mm～0.3mm）の両面、または、同両面にNiをコーティングした後にNi層の表面にSn成分の被覆層を形成した薄板の両面を、多数の突起を有する電極接触側となるように燃料電池用セパレータの形状にプレス成形して、燃料ガス側セパレータ用および酸化剤ガス側セパレータ用の薄板を形成した。次いで、これら両薄板を重合して非酸化雰囲気の下でSnの融点以上の温度にて加熱処理して、Snを介して両薄板が互いに接合された燃料ガス側セパレータと酸化剤ガス側セパレータが一体のセパレータを形成した。

【0028】得られたセパレータにおいては、両薄板の接合部に冷却用の水路を有する構造に構成することができ、かかる構成とすることにより、燃料電池用セパレータのコストの低減と、燃料ガス側および酸化剤ガス側セパレータ間の導電性の向上を図ることができる。なお、かかるセパレータにおいては、電極接触側の表面にSn-Fe化合物、Sn-Ti化合物、Sn-Ni化合物等が存在していることが確認され、かつ、被覆層が基材表面から剥離していないことが確認された。

【試験例7】本試験例では、SUS304の薄板状基材（厚さ0.15mm）の表面に厚さ2μmのNi鍍金を施した後にNi層の表面に厚さ10μmのSn成分の被覆層を形成した薄板をプレス成形して、その後非酸化雰囲気の下でSnの融点以上の温度にて加熱処理して、燃料ガス側セパレータおよび酸化剤ガス側セパレータを形成した。これら両セパレータを採用して固体高分子型燃料電池を構成してその電池特性を測定し、その結果を図9のグラフに示す。

【0029】なお、比較例として、SUS304の薄板状基材（厚さ0.15mm）の表面に厚さ10μmの緻密カーボングラファイト成分の被覆層を形成した薄板、SUS316、Tiの薄板状基材（厚さ0.15mm）

【図1】



のみの薄板をプレス成形してなる各種のセパレータを構成部材とする固体高分子型燃料電池の特性を、図9のグラフに併せて示す。

【0030】同図を参照すると、本試験例に係る燃料電池用セパレータにおいては、緻密カーボングラファイト製のセパレータとほぼ同等の特性が得られることが認められ、しかも、かかる特性は経時変化がほとんどないことが確認された。

【図面の簡単な説明】

10 【図1】各種セパレータ材料の接触抵抗を示すグラフである。

【図2】金属製の薄板状基材の表面に厚さの異なるSn成分被覆層を有する各種セパレータ材料の接触抵抗を示すグラフである。

【図3】金属製の薄板状基材の表面に異なるSn成分被覆層を有する各種セパレータ材料の接触抵抗を示すグラフである。

【図4】金属製の薄板状基材の表面にSn成分被覆層を有するセパレータ材料の加熱処理前後の断面組織を示す顕微鏡写真である。

20 【図5】図4に示す加熱処理後のセパレータ材料における被覆層のX線回折のチャートである。

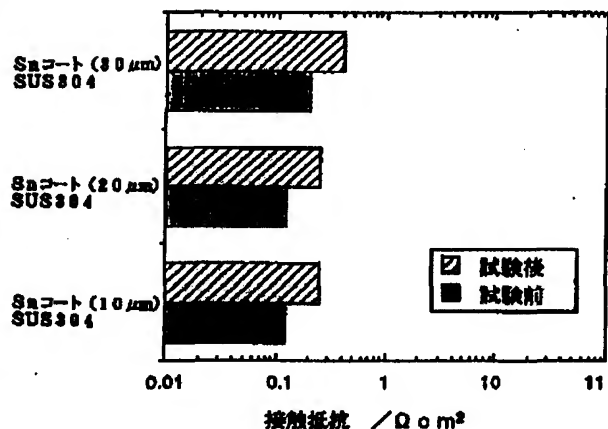
【図6】金属製の薄板状基材の表面にNiをコーティングした後にNi層の表面にSn成分の被覆層を形成してなるセパレータ材料の加熱処理前後の断面組織を示す顕微鏡写真である。

【図7】図6に示す加熱処理後のセパレータ材料における被覆層のX線回折のチャートである。

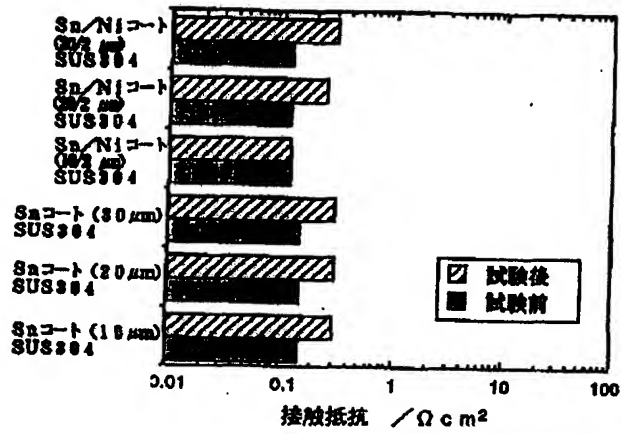
30 【図8】金属製の薄板状基材の表面にNiをコーティングした後にNi層の表面にSn成分の被覆層を形成してなるセパレータ材料の加熱処理後の断面組織を示す顕微鏡写真である。

【図9】各種材料からなるセパレータを構成部材とする各種固体高分子型燃料電池の電池特性をグラフである。

【図2】



【図3】



【図4】



50 μm

加熱処理前

【図8】



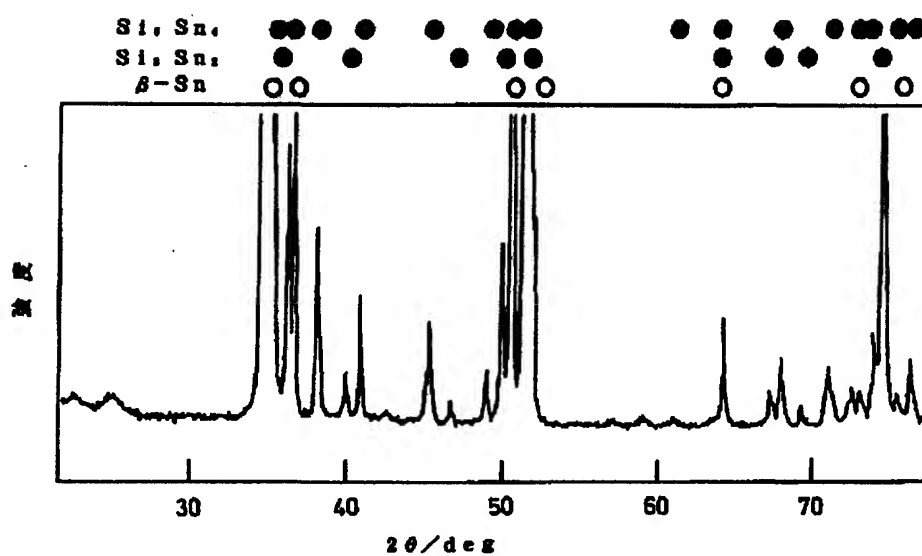
50 μm



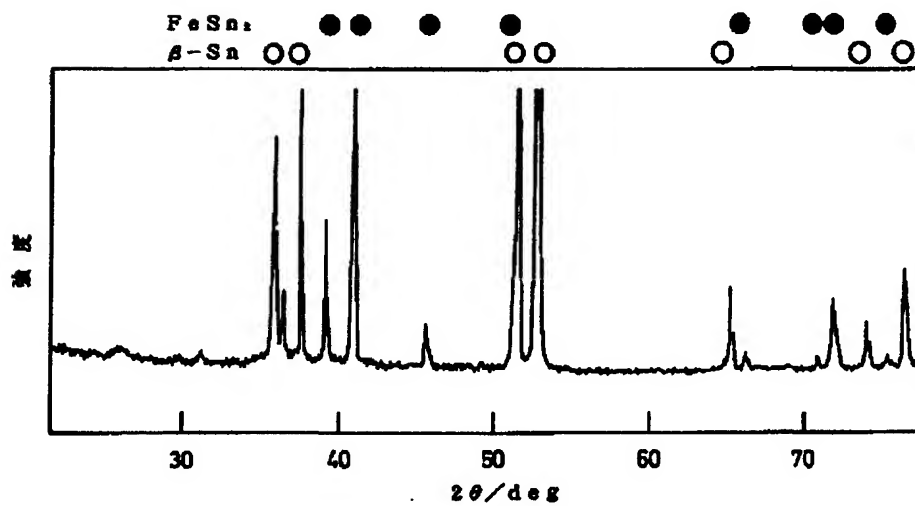
50 μm

加熱処理後

【図 5】

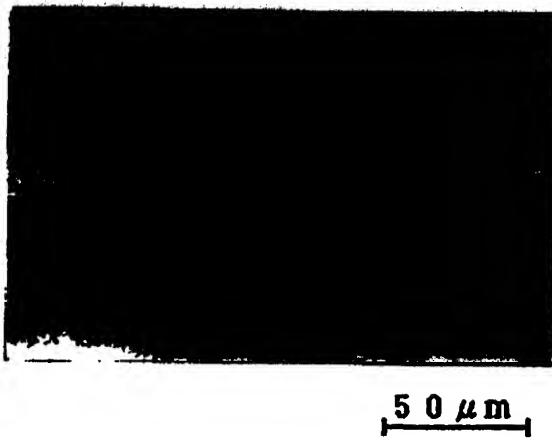


【図 7】

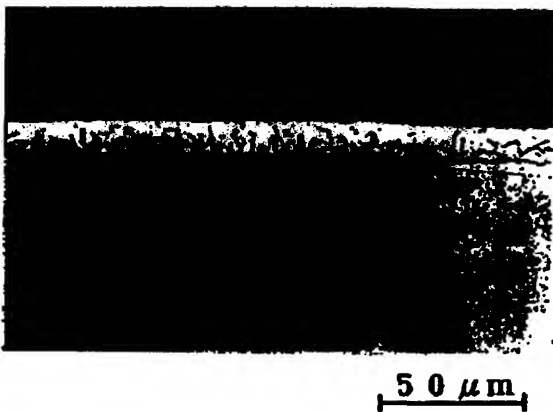




【図6】

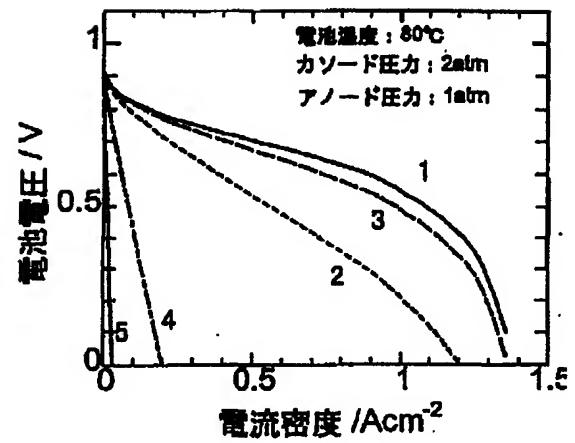


加熱処理前



加熱処理後

【図9】



- |    |                                   |
|----|-----------------------------------|
| 1. | グラファイト (従来品)                      |
| 2. | GrコートSUS304                       |
| 3. | 加熱処理した<br>Sn/Niコート(10/2 μm)SUS304 |
| 4. | Ti                                |
| 5. | SUS316                            |

【手続補正書】

【提出日】平成9年11月19日

【手続補正1】

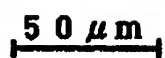
【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】図4

【補正方法】変更

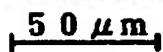
【補正内容】

【図4】

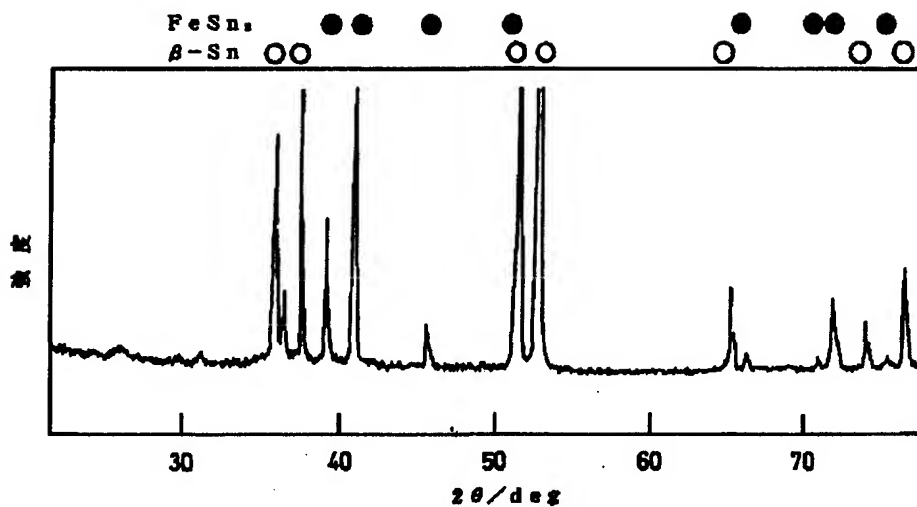


### 加熱処理前

【图5】



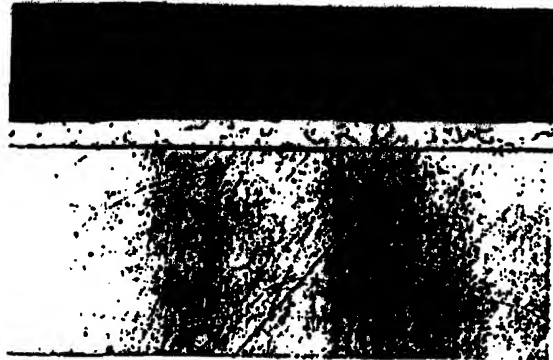
### 加熱処理後



【補正対象項目名】 図6  
【補正方法】 変更

【補正内容】

【図 6】



5 0  $\mu$  m

加熱処理前

【手続補正 4】

【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】図 7

【補正方法】変更

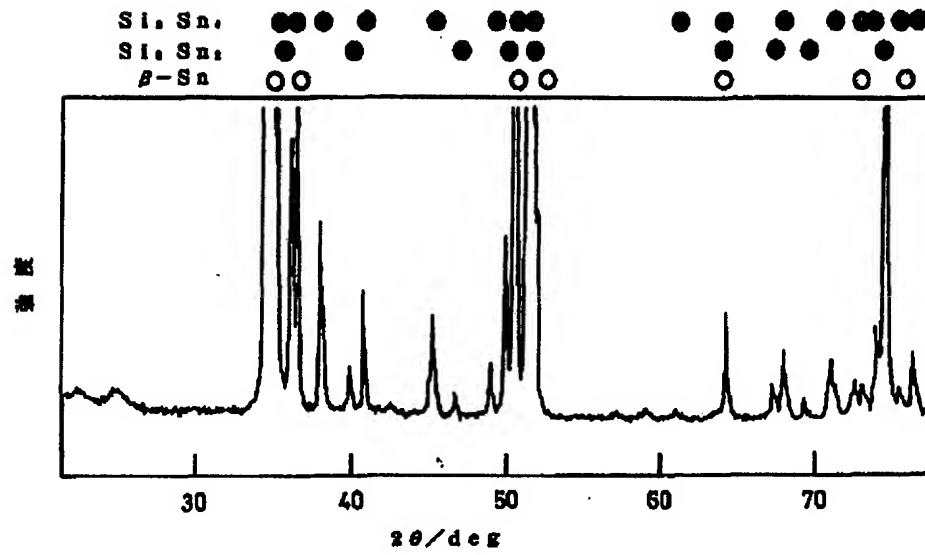
【補正内容】

【図 7】



5 0  $\mu$  m

加熱処理後



フロントページの続き

(72)発明者 阿部 勝司

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72)発明者 朝岡 賢彦

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番  
地の1 株式会社豊田中央研究所内